

Approved For Release STAT  
2009/08/19 :  
CIA-RDP88-00904R000100120

Denied

Next 1  
Page(s)  
In  
Approved For Release nt  
2009/08/19 : Denied  
CIA-RDP88-00904R000100120



Вторая Международная конференция  
Организации Объединенных Наций  
по применению атомной энергии  
в мирных целях

A/CONF.15/P/2207  
(USSR)  
ORIGINAL: RUSSIAN

Не подлежит оглашению до официального сообщения на Конференции

ИЗУЧЕНИЕ МИГРАЦИИ РАДИОЭЛЕМЕНТОВ В ГРУНТАХ

В.И.Спицын, В.Д.Балукова, А.Ф.Наумова, В.Б.Громов,  
Ф.М.Спиридонов, Е.М.Ветров, Г.И.Графов

связи с развитием применения атомной энергии в мирных целях, значительно увеличивается объем производства ядерного горючего, что неизбежно влечет за собой накопление радиоактивных отходов, которые, в основной части подлежат захоронению. Вопрос о методах переработки и хранения отходов радиохимических производств приобретает все большее народнохозяйственное значение и может лимитировать дальнейшее развитие использования атомной энергии.

В литературе описано несколько способов захоронения радиоактивных сбросов (1-12).

1. Хранение упаренных растворов в подземных стальных или бетонных резервуарах.
2. Остекловывание или цементирование с последующим зарыванием блоков в землю или сбрасыванием их в океан.
3. Слив радиоактивных растворов в океан и реки.
4. Сброс радиоактивных отходов в закрытые водоемы и другие земляные хранилища.
5. Использование шахт и старых нефтяных скважин.

Наиболее дешевым и доступным должен являться метод захоронения радиоактивных отходов в открытых земляных хранилищах. Однако, вопросы сорбции продуктов деления минералами почв и грунтов еще недостаточно изучены (13-21). Кроме того, несмотря на применение защитных экранов и кольматирующих слоев, всегда может иметь место просачивание радиоактивных растворов в подстилающие грунты. Условия миграции радиоизотопов с грунтовыми водами до настоящего времени в литературе освещались очень мало (22-24).

25 YEAR RE-REVIEW

-2-

посвящена изучению закономерностей сорбции на некоторыми природными сорбентами: грунтами и минералами, из растворов различного солевого содержания. Особое внимание было уделено стронцию-90, как наиболее опасному в экологическом отношении осколочному изотопу. Опыты проводились как в лабораторных, так и в полевых условиях. Были исследованы карбонатные и кислые бескарбонатные, карбонатные суглинки, легкие карбонатные глины, тяжелые глины, ряд чистых глинистых минералов, полевые шпаты, группы кальцита, гипса и др. Исследованию подвергались два типа:

1. Содержащий  $\text{NaOH}$  (4-8 г/л) и  $\text{NaNO}_3$

2. Содержащий  $\text{HNO}_3$  (6-8 г/л) и  $\text{Ag}(\text{NO}_3)_3$

В опыты добавлялись отдельные радиоэлементы с различной активностью, или же вносились смеси продуктов деления.

В экспериментах применялись статические и динамические методы. В статических методах навески сорбента встряхивались с определенными объемами растворов до наступления равновесия. Затем проводились статические анализы. Динамические опыты производились в колонках диаметром 1 см, наполненных различными сорбентами. Сорбенты предварительно измельчались, и отбирались пробы, хотя некоторые из них, например монтмориллонит, имели более высокую дисперсность. Для изучения кинетики сорбции свойств грунтов использовались навески от 3 до 30 г.

В результате исследований было показано, что поглощение радиоизотопов, за исключением радиоциркония, радиоактивно происходит более полно из щелочного раствора.

Влияние pH среды на поглощение церия. Показано, что поглощение церия из раствора, содержащего нитрат натрия, независимо от pH (интервал концентраций - от  $3 \cdot 10^{-4}$  до  $3 \cdot 10^{-3}$  мг-экв/л), а также от количества сорбента (навески грунта от 3 до 30 г на 1 л раствора), происходит на 98-100%. В кислой же среде поглощение церия происходит на 10-20%.

-3-

среде, из алюминийсодержащего раствора захват церия грунтами практически не наблюдается.

Степень поглощения радиорутения грунтами чрезвычайно низка, однако, в щелочном растворе она может достигнуть нескольких десятых мкюри на 100 г грунта при использовании рутения, находящегося в катионной форме. Из кислой среды рутений практически не поглощается. Находящийся в анионной форме рутений совершенно не сорбируется грунтами.

Захват стронция в кислой среде также снижается в несколько раз по сравнению со щелочной средой. При использовании щелочного раствора с концентрацией стронция  $5,32 \cdot 10^{-3}$  мг экв/л, грунтами, независимо от их природы, взятыми в количестве 30 г/л, было поглощено около 60% стронция. При тех же условиях из кислого алюминиевого раствора сорбировалось только 5-6% от исходного количества. С уменьшением навесок грунта в 10 раз происходит снижение захвата стронция в щелочной среде до 30-33%.

Кроме того, было исследовано большое число природных сорбентов, преимущественно чистых минералов неорганического происхождения, входящих в состав грунтов и почв (25), для определения степени поглощения ими микроколичеств стронция. В процессе проведения опытов этого раздела работы использовались следующие растворы (табл.1).

Таблица 1

№ раствора	Активность по $Sz^{89,90}$ кюри/л	Концентрация ионов кальция, мг/л
1	$1,5 \cdot 10^{-6}$	0
2	$1,5 \cdot 10^{-5}$	0
3	$8 \cdot 10^{-6}$	100

Первые два раствора содержали только невесомые количества стронция 89,90 ( $10^{-7}$ - $10^{-9}$ н) различного уровня активности без добавок каких-либо солей. К третьему раствору был добавлен хлорид кальция, причем концентрация кальция приблизительно равнялась его содержанию в речной воде (26).

Результаты экспериментов приведены в таблицах 2 и 3. Монтмориллонитовые глины разных месторождений в таблицах обозначены

-4-

Таблица 2  
Поглощение радиострелки некоторыми природными силикатами и алмосиликатами

Группа	Минерал	№ исходного раствора	Сорбированность радиострелки в %	Группа	Минерал	№ исходного раствора	Сорбированность радиострелки в %	Группа	Минерал	№ исходного раствора	Сорбированность радиострелки в %
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Гидроксида	Глауко-нит	1	83		А	1	99,9	Группа кварца	Кварц	1	20
		2	78			2	99			2	19
		3	70			3	98			3	6
	Вермикулит	1	88	Б		1	99,9	Нефелиновые (порода)	Мариуполит	1	86
		2	91			2	99,9			2	92
		3	82			3	99			3	54
	Биотит	1	72	В		1	92	Нефелиновые (порода)	Хибинит	1	70
		2	81			2	95			2	72
		3	72			3	76			3	29
Силика	Мусковит	1	87	Группа монтмориллонита	Г	1	98	Нефелиновые (порода)	Нефелин	1	71
		2	85			2	99			2	69
		3	80			3	92			3	40

-5-

2713-47

(продолжение табл.2)

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Группа листена	Дистен	1	66	Амфиболы	Нагро- лит	1	60	Група асбес- та	Ас- бест	1	56
		2	63			2	66			2	48
		3	36			3	36			3	41
Группа таляка- пиррофилита	Каоли- нит	1	68	Група галуа- зит	Десмин	1	22	Полевые шпаты	Альбит	1	27
		2	67			2	27			2	32
		3	40			3	12			3	5,5
Группа таляка- пиррофилита	Циксит	1	38	Група галуа- зит	Галлуа- зит	1	88	Полевые шпаты	Олиго- клаз	1	39
		2	29			2	89			2	37
		3	20			3	73			3	24
Группа таляка- пиррофилита	Тальк	1	18	Група пиро- ксенов	Эгирин	1	50	Полевые шпаты	Лабра- дор	1	50
		2	21			2	60			2	61
		3	15			3	21			3	35
Группа листена	Пиро- филит	1	14	Група ксенов	Диоп- сид	1	47	Полевые шпаты	Микро- клин	1	28
		2	14			2	47			2	24
		3	6			3	19			3	11
Группа листена	Дистен	1	44	Амфиболы	Роговая обманка	1	45	Полевые шпаты			
		2	44			2	48				
		3	22			3	23				

-6-

Таблица 3  
Поглощение радиостронция различными минералами, кроме силикатов и алюмосиликатов

Группа	Минерал	№ исход- ного раствора	Сорбировано радиострон- ция в %	Группа	Минерал	№ исход- ного раствора	Сорбировано радиострон- ция в %
1	2	3	4	5	6	7	8
Группа кальцита	Магнезит	1	34	Материалы органическо- го происхождения	Торф	1	93
		2	33			2	92
		3	24			3	75
	Кальцит	1	40		Торфяная зола	1	55
		2	48			2	54
		3	21			3	39
	Известняк (порода)	1	45		Бурый уголь	1	60
		2	49			2	58
		3	39			3	37
	Арагонит	1	39		Диатомит	1	58
		2	40			2	60
		3	27			3	39
	Исланд- ский шпат	1	33			1	2
		2	38		Ковелин	2	4
		3	20			3	1

-7-

(продолжение табл. 3)

1	2	3	4	5	6	7	8
Группа корунда- на ру- гиса	Анкерит	1 2 3	35 40 15	Группа лениндокрита- гетита Группа апатита	Лимонит	1 2 3	50 48 25
	Доломит	1 2 3	30 28 21			1 2 3	70 68 48
	Ангидрит	1 2 3	44 39 25			1 2 3	96 94 89
Группа милмен- тима	Гипс- алебастр	1 2 3	48 50 16	Группа гидрогипсита	Фторапатит	1 2 3	61 59 31
	Пирролизит	1 2 3	99,9 99 95			1 2 3	58 57 32
	Гематит	1 2 3	28 20 22			-	-



-8-

буквами: А - монтмориллонитовая глина месторождения Кзыл-СП (Казахстан), Б - огландинская (Туркменская ССР), В - Крымская (Кил), Г - Аскангель (Грузия). Значение рН равновесных растворов колебалось от 7,2 до 9. Количество сорбента равнялось 1г на 50 мл раствора.

Как видно из приведенных результатов, среди испытанных материалов наиболее хорошо поглощают радиостронций монтмориллонит, каолинит, слюды, гидрослюды, пиролизит, галлуазит, торф, фосфорит и нефелиновые сиениты. Эти сорбенты обладают также и большой сорбционной емкостью (27).

Следует отметить, что широко распространенные в грунтах и почвах минералы групп кальцита, кварца, гипса, полевых шпатов и т.п. поглощают радиостронций незначительно.

Таким образом, поглощение радиостронция неорганической частью почв и грунтов будет в основном определяться глинистыми минералами, входящими, обычно, в состав коллоидно-дисперсной фракции указанных материалов. Кроме того, как вытекает из таблиц 2 и 3, присутствие ионов кальция в концентрации приблизительно равной его содержанию в речной воде, уже значительно снижает поглощение радиостронция изученными сорбентами. Можно ожидать, что радиостронций, попав в грунты и почвы, будет при прочих равных условиях в большей мере задерживаться там, где имеются глинистые минералы и где грунтовые воды содержат наименьшее количество кальция.

В наших экспериментах не удалось обнаружить какого-либо влияния уровня радиоактивности на степень поглощения радиостронция. По-видимому, это объясняется тем, что были взяты довольно большие навески сорбентов.

Более тщательно исследовалось поглощение радиостронция монтмориллонитом. Данный минерал широко распространен как в рассеянном состоянии, так и в виде крупных месторождений (27). Была изучена сорбция стронция-90 монтмориллонитовыми глинами трех месторождений (А, Б, В см. стр. 4) из растворов, содержащих различные концентрации ионов:  $H^+$ ,  $Na^+$ ,  $K^+$ ,  $NH_4^+$ ,  $Ca^{+2}$ ,  $Mg^{+2}$ ,  $Ba^{+2}$ ,  $Fe^{+3}$ ,  $Al^{+3}$ .

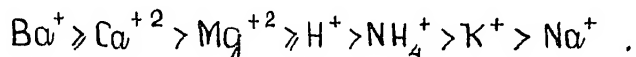
Ионная сила растворов в ходе выполнения опытов оставалась постоянной, значение рН равнялось 7-8. При изучении поведения микроколичеств стронция в системе сорбент-раствор, в зависимости от состава раствора, был применен метод определения коэффициента распределения ( $\eta$ ) в статических условиях (28):

-8-

$$\eta = \frac{VC_{Me} \cdot 100}{VC_{Me} + Q_{Me}}, \quad (1)$$

где  $V$  - объем раствора,  $C_{Me}$  - равновесная концентрация изучаемого иона в растворе,  $Q_{Me}$  - количество иона, поглощенного данной навеской сорбента.

На рис. 1 показаны результаты измерений коэффициента распределения радиостронция для монтмориллонита Огланлинского месторождения. Кривые, отражающие изменение коэффициента распределения в зависимости от состава раствора для монтмориллонита двух других месторождений, незначительно смещены относительно друг друга. Однако как характер изменения кривых, так и их последовательность в случае различных катионов, присутствующих в растворе вместе с радиостронцием, сохраняются для всех трех сорбентов. Это вполне понятно, учитывая их минеральную идентичность. Следовательно, природа монтмориллонита оказывает влияние на некоторые количественные параметры, характеризующие сорбцию, не изменяя самого хода поглощения в целом. Поэтому, в целях сокращения материала, приведены данные, отражающие процесс сорбции радиостронция только монтмориллонитом Огланлинского месторождения. Исходя из положения кривых рис. 1, можно для монтмориллонита расположить катионы, по их способности уменьшать поглощение радиостронция, в следующий ряд:  $Al^{+3} > Fe^{+3}$ ,



Как видно из приведенного ряда, в общем случае чем выше валентность катиона, а при одинаковой валентности чем меньше радиус гидратированного иона, тем сильнее он уменьшает степень сорбции радиостронция монтмориллонитом. Следует отметить, что результаты, относящиеся к системам  $Sr^{+2}-Fe^{+3}$ ,  $Sr^{+2}-Al^{+3}$ , нельзя сравнивать с аналогичными данными для одновалентных или двухвалентных катионов, так как при проведении опытов значение pH растворов равнялось 2.

Проделанные нами расчеты показали, что процесс поглощения радиостронция монтмориллонитом, являясь ионообменным процессом, количественно очень точно описывается законом действующих масс. Причем нет никакой принципиальной разницы при сорбции стронция в макро- и микрообластях концентраций его ионов. Константы обмена,

-10-

полученные с весовыми количествами стронция, вполне можно применить для расчета процесса поглощения невесомых количеств стронция.

Десорбция радиостронция с монтмориллонита также подчиняется закону действующих масс, на основе которого была получена формула, позволяющая вычислить количество радиостронция, оставшегося на сорбенте после "n" обработок его порциями десорбирующего раствора постоянного солевого состава:

$$Q_n = Q_0 \left( \frac{K}{\frac{V}{m} + K} \right)^n, \quad /2/$$

где  $Q_0$  - количество радиостронция на сорбенте до десорбции,  
 $Q_n$  - количество радиостронция на сорбенте после n актов десорбции,

n - число актов десорбции,

K - константа

V - объем порций раствора, которыми ведется десорбция радиостронция,

m - вес сорбента.

Расчеты по формуле /2/ и экспериментальные результаты очень хорошо совпадают.

Из других осколочных радиоэлементов цирконий и ниобий одинаково хорошо (на 98-99%) захватываются изученными грунтами как из щелочного, так и из кислого раствора. Емкость грунтов по отношению к цирконию и ниобию установить не удалось, так как она, по-видимому, чрезвычайно велика, а добавление в раствор макроколичеств циркония и ниобия было невозможно из-за малой растворимости соединений этих элементов в использованных растворах.

Степень поглощения цезия грунтами мало зависит от кислотности среды. Из растворов с концентрацией по цезию  $1,2 \cdot 10^{-3}$  мг-экв/л при использовании навески грунта 30 г/л сорбируется: песками 50%, суглинками 90%, глинами 90% от исходного количества.

Максимальная емкость грунтов по отношению к цезию была установлена с помощью динамических опытов в стеклянных колонках. Скорость фильтрации составляла 0,5-1,0 мл/час. Найдено, что суглинками поглощается 4 мг-экв цезия на 100 г грунта, причем 11% от поглощенного количества можно затем легко смыть водой. Супесь захватывает 1,25 мг-экв цезия на 100 г. При последующей обработке супеси водой отмывается около 30% цезия. Однако грунт способен снова сорбировать из свежего раствора цезий в количестве, равном отмытому.

-11-

На рис.2 представлены кривые сорбции (1), десорбции (2) и вторичной сорбции (3) цезия. В опыте использовался щелочной раствор с концентрацией  $\text{CsNO}_3$  10 мг-экв/л. Количество супеси в колонке составляло 10 г. Результаты показывают, что кривые десорбции и вторичной сорбции цезия практически совпадают.

При испытании сорбционных свойств грунтов по отношению к смеси продуктов деления, находящихся в щелочных и кислых растворах, были подтверждены результаты предварительных опытов, проведенных с отдельными радиоэлементами. Используемые в этом случае растворы имели следующий радиохимический состав:  $\text{Sr}^{90}$  - 14,5%;  $\text{Cs}^{137}$  - 16%;  $\text{Ru}^{106}$  - 68%; редкоземельные элементы 0,5%;  $\text{Zr}^{95}$  +  $\text{Nb}^{95}$  1% при суммарной  $\beta$ -радиоактивности около 50 мкюри/л.

Изучение сорбционной способности песков производилось в динамических условиях со скоростью фильтрации 2-5 мл/час. Было установлено, что в щелочной среде пропуск радиоактивности наблюдается в первых каплях фильтрата, вследствие присутствия мало сорбирующегося рутения: не более 30% рутения от исходного количества его в растворе задерживается песком.

Емкость бескарбонатных супесей, содержащих гумус, составляла по отношению ко всей взятой сумме радиоэлементов 39-48 мг-экв. радия по  $\gamma$ -излучению и 410-538 мкюри по  $\beta$ -излучению на 100 г грунта. Несколько ниже емкость карбонатного песка она составляла 10 мг-экв радия по  $\gamma$ -излучению и 180 мкюри  $\beta$ -излучению на 100 г грунта.

При пропускании через пески кислого алюминиевого раствора радиорутений, редкие земли и радиостронций практически не сорбируются. Первая порция профильтрованного раствора содержала около 100 % радиорутения и редких земель, 80% радиостронция и около 15-18% радиоциркония и радионий. Таким образом, из кислого алюминиевого раствора в реальных условиях песками смогут сорбироваться только радиоцезий, радиоцирконий и радионий. Изучение же сорбционных свойств песков по отношению к этим радиоэлементам в кислой среде не представляло интереса, так как предварительные опыты с отдельными радиоэлементами показали, что они в равной степени хорошо поглощаются из щелочной и кислой среды.

Сорбционная способность суглинков и глин по отношению к щелочным растворам изучалась в статических условиях. Одна и та же навеска многократно обрабатывалась раствором до тех пор, пока

-12-

наблюдалось поглощение радиоактивности из раствора. Было выяснено, что из солевого щелочного раствора происходит сорбция радиостронция и радиоцезия в следующих количествах:

Грунт	Радиоцезий мкюри/100г	Радиостронций мкюри/100г
Средний суглинок, карбонатный	242,0	7,0
Легкая глина, карбонатная	200,0	9,4
Песок карбонатный	172,0	9,4

Размеры поглощения радиоциркония, радиониебия и редких земель не устанавливались, так как на основании предварительных опытов можно ожидать, что в щелочной среде емкость грунтов по отношению к ним очень велика. Содержание этих элементов в растворах, подвергнутых исследованию, было незначительным.

Поглощение радиоэлементов, очевидно, будет сильно зависеть от толщины слоя грунта, через который просочится жидкость. Лабораторные исследования со щелочными растворами, содержащими продукты деления, показали, что с увеличением навесок грунта, при использовании одного и того же объема раствора, степень поглощения смеси радиоэлементов повышается до некоторого предела, который обусловлен наличием несорбирующегося радиорутения в анионной форме. Применяя для очистки радиоактивного щелочного раствора навески грунтов порядка 400 г/л, можно довести степень поглощения радиоэлементов до 94-96% от исходного количества. При дальнейшем увеличении навесок грунтов степень сорбции не повышается (рис.3).

Из кислого раствора, независимо от величины навесок грунта, степень сорбции суммы радиоэлементов чрезвычайно низка и достигает 28-30%. В основном, из сильнокислой среды поглощаются радиоцирконий, радиониебий и до некоторой степени радиоцезий.

При обработке грунтов, поглотивших радиоизотопы, водой или щелочным раствором, содержащим нитрат натрия, часть радиоэлементов переходит в раствор. Отмывка солевым раствором происходит в несколько раз эффективнее чем водой:

-13-

Грунт	Условия десорбции	Отмыто радиоизотопов (в % от поглощенной активности)
Карбонатный суглинок	Щелочной раствор	3,0
	Вода	0,2
Легкая карбонатная глина	Щелочной раствор	4,0
	Вода	0,14
Песок карбонатный	Щелочной раствор	4,13
	Вода	0,14

Согласно радиохимическому анализу десорбционных растворов, в основном, с грунтов смываются радиостронций и радиорутений. Остальные радиоизотопы довольно прочно удерживаются грунтами.

Десорбированные элементы снова захватываются грунтами, причем степень вторичной сорбции зависит от количества добавленного грунта. На рис.4 представлена зависимость понижения радиоактивности омывочных растворов от количества грунта.

Таким образом, лабораторные эксперименты указывают, что в изученных грунтах наиболее подвижными являются стронций и рутений.

С целью проверки способности грунтов в естественном сложении поглощать и удерживать продукты деления из растворов и грунтовых вод, были проведены полевые опыты. Для этого использовался участок, основными поверхностными грунтами которого были аллювиальные пески, по большей части мелкозернистые, с незначительными прослойками и линзами суглинков. В толще песков, на уровне 5-7 м располагались грунтовые воды, движение которых имело ламинарный характер. Сверху и снизу водоносный горизонт ограничивался плотным слоем суглинка небольшой толщины. Предварительными исследованиями были сняты гидрогеологические характеристики участка, определено направление и скорость движения грунтового потока.

На участке были заложены три опытных фильтрующих колодца (рис.5), через которые в грунтовый поток вводился раствор, содержащий продукты деления и нитрат натрия. В каждый колодец сбрасывалось по 300 кюри радиоактивных веществ при содержании нитрата натрия 200 г/л. В состав радиоактивных растворов входили:  $\text{Sr}^{90}$ ,  $\text{Cs}^{137}$ ,  $\text{Zr}^{95}$ ,  $\text{Nb}^{95}$ ,  $\text{Ru}^{106}$ ,  $\text{Ce}^{144}$  и другие осколочные редкоземельные элементы.

-14-

Конструктивное оформление колодцев и расположение контрольных скважин, представленное на рис.5, было рассчитано на изучение распространения радиоактивных изотопов в водоносном горизонте как вместе с потоком, так и против него. Колодцы представляли собой скважины диаметром 1 м, обсаженные асбоцементными трубами, внутри покрытыми битумом. Каждый колодец оборудован крышкой, уровнем, пробоотборником и двумя сливными трубами, через которые производилась загрузка растворов. Устройство фильтрующего дна колодцев позволяло по разному вводить радиоактивные растворы в поток. Глубина первого колодца достигала верхнего уровня грунтовых вод, что позволило сбросить раствор непосредственно в поток через всю площадь дна. На втором колодце сброс раствора осуществлялся через отверстия в глиняном замке, толщиной 25 см. Фильтрующим дном в третьем колодце являлся метровый слой подстилающего песчаного грунта естественной структуры.

Растворы заливались однократно, при этом падение уровня во всех трех опытах происходило достаточно быстро. Все последующие наблюдения за распространением радиоизотопов проводились путем отбора проб грунтовой воды из контрольных скважин и продолжались в течение нескольких месяцев. Пьезометры скважин устанавливались таким образом, чтобы перфорированная часть труб перекрывала водонесущий грунтовый слой. Перед каждым отбором проб вода в скважине тщательно перемешивалась и в течение 3-5 минут отстаивалась для осветления.

Непосредственно в пробах воды проводилось определение pH, значения которого на протяжении всего времени опытов колебалось в пределах 7-8. Радиометрические и радиохимические анализы требовали предварительного концентрирования, которое осуществлялось, главным образом, путем упаривания не менее чем в 10 раз.

Как показали наблюдения, распространение радиоактивных загрязнений в водоносном горизонте можно разделить на два периода. Первый период относится ко времени проникновения растворов в грунтовые воды при заливке колодцев, когда нарушается естественное движение грунтового потока. В этот период, ввиду небольших скоростей перемещения грунтовых вод и быстрой фильтрации растворов, растекание их в потоке произошло практически по одинаковому радиусу во всех направлениях. В ближайших от колодцев скважинах как вдоль потока, так и против него, отмечалось возрастание бета- и гамма-



-15-

радиоактивности воды, которое продолжалось в течение нескольких дней после заливки и отмечалось в радиусе 3 метров от 1-го и 2-го колодцев (рис. 6 и 7) и в радиусе 1 метра от 3-го колодца. При этом было замечено, что уровень загрязнения воды в направлении против тока в первые шесть дней после заливки оказался несколько выше на всех трех колодцах. Однако повышение степени радиоактивности воды в скважинах, расположенных вдоль потока, продолжалось значительно дольше, чем в скважинах противоположного направления. Так, радиоактивность воды скважины I возрастала в течение 12 дней, скважины II - 20 дней и скважины 24 - 35 дней, в то время как в скважинах обратного направления (37, 38 и 41) падение радиоактивности начиналось на шестой день работы колодцев.

Благодаря влиянию напора и высокой фильтрующей способности дна колодцев, распространение радиоактивных элементов в потоке произошло почти на всю глубину водонесущего горизонта. Время контакта грунтовых частиц с раствором оказалось недостаточно продолжительным для того, чтобы даже легко сорбируемые радиоэлементы (цирконий, ниобий, цезий и редкоземельные элементы) закрепились на грунте. В этот период времени вода ближайших от колодца скважин (на расстоянии 1 м от стенки колодца) содержала все внесенные в колодец продукты деления с несколько измененным процентным соотношением радиоэлементов по сравнению с первоначально залитым раствором.

По лабораторным данным фильтрация через такое количество грунта должна была обеспечить очистку от циркония, ниобия, церия, редкоземельных элементов и в большой степени от цезия. Анализ вод скважин, удаленных более чем на 1 м от стенки колодцев, показали, что главными радиоактивными загрязнениями в них являются радиостронций и радиорутений. Таким образом, в условиях быстрого ввода радиоактивного раствора контакт между частицами грунта и ионами радиоизотопов оказывается недостаточным для достижения полного сорбционного равновесия, даже для легко захватываемых компонентов при наличии большого избытка сорбента.

Второй период миграции радиоэлементов относится ко времени восстановления нормального режима движения грунтовых вод. Наблюдения за уровнями воды в скважинах показали, что восстановление естественного режима в потоке произошло на участке колодцев I и 3, примерно, через 3 дня, а на колодце 2 - через 6-8 дней. Прибли-



-10-

зительно, к этому времени окончилось повышение степени радиоактивности воды в скважинах, расположенных против потока. Миграция радиоэлементов в этот период зависит только от процессов сорбции и десорбции на водонесущих грунтах и стационарной скорости движения грунтовых вод.

В результате наблюдений нами было установлено последовательное нарастание и спад радиоактивности воды в скважинах по направлению движения грунтового потока. В скважинах первого радиуса (1 м от стенки колодца) наблюдался один максимум уровня радиоактивности, тогда как в скважинах второго радиуса (3 м от стенки колодца) возрастание радиоактивности воды происходило дважды (рис.7). Первые максимумы, в основном, обязаны растеканию растворов начальный период, а вторые являются результатом миграции радиоэлементов вдоль потока при нормальном режиме грунтовых вод. По мере продвижения фронта воды, загрязненной радиоактивными веществами, наблюдалось значительное понижение степени радиоактивности.

На первом радиусе скважин загрязнения воды измерялись десятками и сотнями микроюри/л, на втором, в 3 метрах от колодца, радиоактивность снизилась на 3-4 порядка и на третьем, в 5 м от колодца упала еще на один порядок.

Для изучения характера захвата радиоизотопов грунтом было произведено опытное бурение зараженного участка. Анализы проб грунта, отобранные из разных точек водоносного горизонта, показали, что уменьшение степени радиоактивности на участке между скважинами 1-го и 2-го радиуса, вызвано, главным образом, сорбцией радиоэлементов на грунтах. Дальнейшее понижение уровня радиоактивности определяется значительным разбавлением в потоке, которое происходило, несмотря на ламинарный характер движения грунтовых вод. Последнее обстоятельство послужило причиной необходимости ограничить наши наблюдения радиусом 7-10 м от колодцев.

Радиохимический состав загрязнений, мигрирующих по водоносному горизонту, со временем менялся. Цирконий, ниобий, цезий, редкоземельные элементы при нормальном режиме потока сорбировались и хорошо удерживались водонесущим песком, что подтверждало наши лабораторные данные. Несколько большей подвижностью обладал радиоцезий, но, в основном, радиоактивность воды определялась радиостронцием и радиорутением (рис.8 и 9). Продвижение радиостронция по потоку проходило со скоростью, практически близкой к скорости

движения грунтовых вод. Предельно измеримые количества радиостронция были отмечены в пробах, удаленных на 7 м от колодцев. Анализ грунтов, отобранных на расстоянии свыше 3 м от колодца, показали отсутствие каких-либо радиоактивных загрязнений на них.

Таким образом, полученные данные свидетельствуют о весьма затрудненной сорбции радиостронция на водонасыщенных грунтах и легкой подвижности элемента в грунтовых водах.

Наши наблюдения за миграцией радиорутения позволили установить, что скорость его распространения по потоку, примерно, вдвое меньше скорости радиостронция.

2713-47  
Легкость десорбции радиостронция с песчаных грунтов естественной структуры дополнительно была проверена в процессе промывки подстилающего дна третьего колодца. Естественно, что наличие на этом колодце донного монолита в качестве фильтра, привело к сорбции значительной части загруженных радиоэлементов и уменьшило радиус их распространения в первый период работы колодца. Для проверки прочности закрепления радиоактивности на грунте в конце опыта была проведена промывка монолита 4 м<sup>3</sup> подкисленного раствора нитрата натрия ( $\text{HNO}_3$ , 2 г/л,  $\text{NaNO}_3$ , 200 г/л). В процессе промывки установлено, что с грунта смывается и распространяется по потоку, главным образом, радиостронций. Из остальных радиоэлементов был замечен только радиорутений. Радиоцезий, смытый с песчаного дна колодца, задерживался близлежащими слоями грунта.

Таким образом, результаты полевых опытов подтвердили основные данные лабораторных исследований о закономерностях захвата продуктов деления грунтами. Проведение опытов в условиях, наименее благоприятных для сорбции и закрепления радиоактивных веществ, (поток грунтовых вод) позволило установить, что захоронение в землю таких радиоэлементов как цирконий, ниобий, церий и редкоземельные элементы не должно вызывать серьезных опасений. Поведение цезия, по-видимому, также благоприятно, но нуждается еще в дополнительном изучении.

Основную опасность при сбросе радиоактивных отходов в земляные хранилища, несомненно, представляет стронций, благодаря значительной десорбируемости его даже грунтовыми водами. Рутений в анионной форме практически также не захватывается грунтами различного минералогического состава. С этой точки зрения наиболее благоприятны для устройства земляных хранилищ участки, характеризую-

щиеся низким стоянием грунтовых вод, медленным их движением, малым содержанием ионов кальция и низкой общей засоленностью.

### Л и т е р а т у р а

1. Glueckauf E., *Atomics and Atomic technology*, 6, (9), 270 (1955).
2. Спицын В.И., *Yaderna Energie*, 2, 58-62 (1957)
3. Brouder F.M., *Ind.Eng.Chem.*, 43(7), 1502-1505 (1951)
4. Gorman A.E., *Wastes Eng.*, 106, (10), 528 (1953)
5. Herrington A.C., Shaver R.G., Sorenson C.W., *Nucleonics*, 11, (9), 34-35 (1953)
6. Manowitz B., Richards P., Horrigan R., *Chem.Eng.*, 62, 194 (1955)
7. Renn C.E., *J.Amer.Wat.Wks.Ass.*, 48, 535-537 (1956)
8. Hatch L.P., *Amer.Scient.*, 41, (3), 410 (1953)
9. Joseph A.B., *J.Amer.Wat.Wks.Ass.*, 48, 538-544 (1956)
10. Amphlett C.B., *Atomics and Atomic technology*, 8, 116-121 (1957)
11. Hatch L.P. Regan W.H., *Nucleonics*, 13, (12), 27-29 (1955)
12. Hatch L.P. Manowitz B., *Proceedings of the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, United Nations* (1956)
13. Nishita H., Kowalewsky B.W., Steen A.J., Larsen K.H., *Soil. Sci.*, 81, 317-326 (1956)
14. Amphlett C.B., *J.Applied Chem.*, 6, 11 (1956)
15. Lacy W.I., *Ind.Eng.Chem.*, 46, (5), 1064-1065 (1954)
16. Dawning A.L., *J.Inst.Water Eng.*, 7, 555 (1953)
17. Mc-Henry I.R., *Nucl.Sci.Abstr.*, 10, (9), 3183, 1956
18. Ключковский В.М. О поведении радиоактивных продуктов деления в почвах, их поступлении в растения и накоплении в урожае. Изд.АН СССР, М., 1956
19. Ключковский В.М., Гулякина И.В. Поведение в почвах и растениях микроколичеств стронция, цезия, рутения и циркония. Изд.АН СССР, М., 1957
20. Багрецов В.Ф. Ж.неорг. химии, 1956, 1, 179
21. Гулякина И.В., Одинцева Е.В. Известия ТСХА, 1957, 2, (15), 121-140

-19-

22. Mawson C.A., Proceedings of the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 2, Geneva, United Nations, (1956)
23. Strixness E.G., Proceedings of the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 2, Geneva, United Nations, (1956)
24. Teis Ch.V., Proceedings of the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 2, 679, Geneva, United Nations, (1956)
25. Полюнов Б.Б. Избранные труды, I003-256, Изд.АН СССР, М., 1956
26. Алексин А.О. Гидрохимическая карта рек СССР, Труды Гос. гидрологического института, вып. 25, 1950
27. Грим Р.Е. Минералогия глин, ИЛ, М., 1956
28. Елович С.Д., Кузьмина Л.Г. Колл. ж. XVIII, 1956, № 3, 268

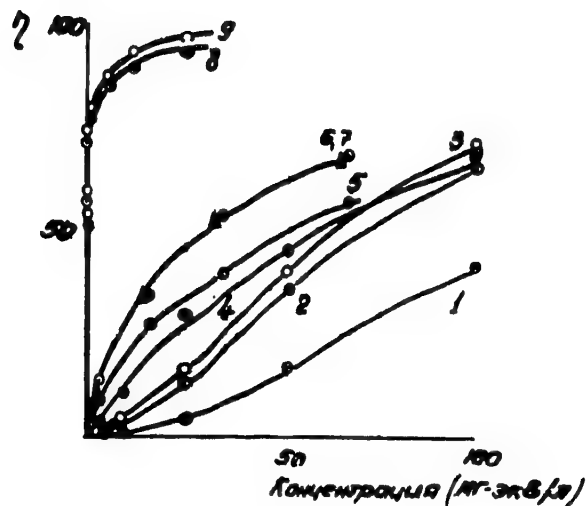


Рис.1. Ход кривых распределения микроколичеств стронция между раствором и сорбентом в присутствии различных катионов: 1-  $\text{Na}^+$ , 2-  $\text{K}^+$ , 3-  $\text{NH}_4^+$ , 4-  $\text{H}^+$ , 5-  $\text{Mg}^{+2}$ , 6-  $\text{Ca}^{+2}$ , 7-  $\text{Ba}^{+2}$ , 8-  $\text{Fe}^{+3}$ , 9-  $\text{Al}^{+3}$

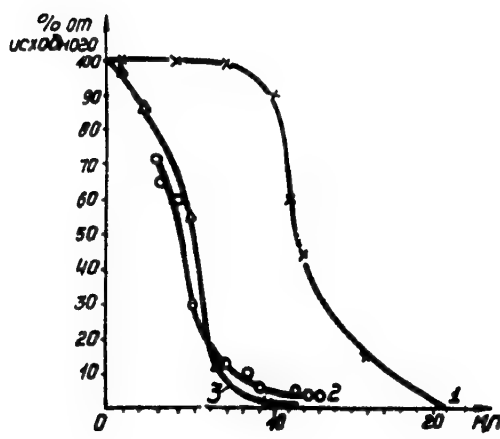


Рис.2. Поглощение цезия супесью в динамических условиях. 1- сорбция; 2- десорбция; 3- вторичная сорбция

-21-

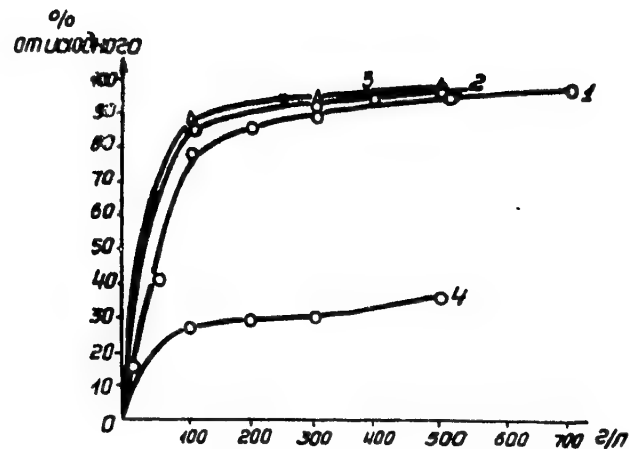


Рис.3. Зависимость поглощения суммы осколочных элементов от величины навесок грунта. Поглощение из щелочной среды: 1- тяжелый карбонатный суглинок; 2- легкая карбонатная глина; 3- средний карбонатный суглинок. Поглощение из кислой среды: 4- средний карбонатный суглинок

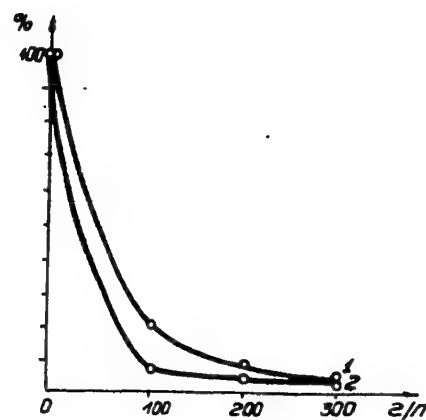


Рис.4. Вторичное поглощение суммы радиоэлементов из десорбционных растворов. 1- поглощение из щелочного раствора; 2- поглощение из воды

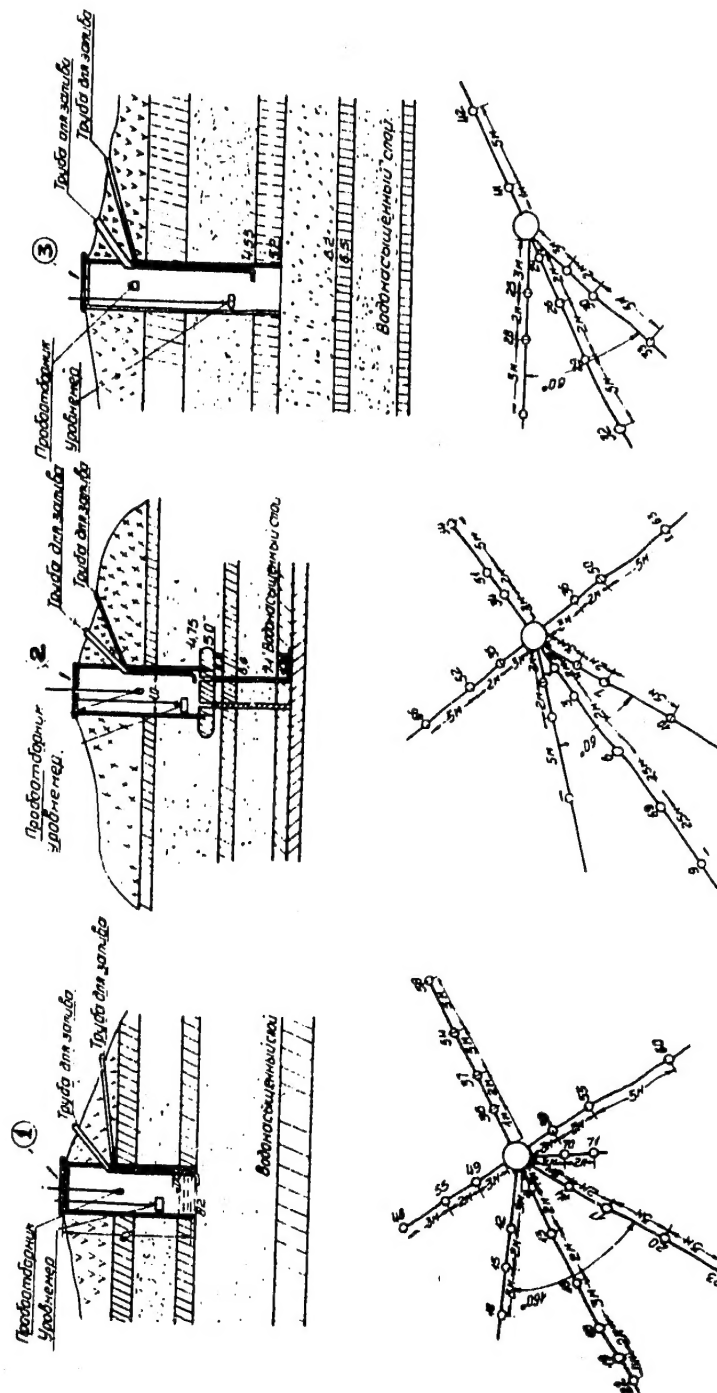


Рис.5. Схемы конструкции колодцев и расположения контрольных скважин: 1- колодец № 1; 2- колодец № 2; 3- колодец № 3

2713-47

-23-

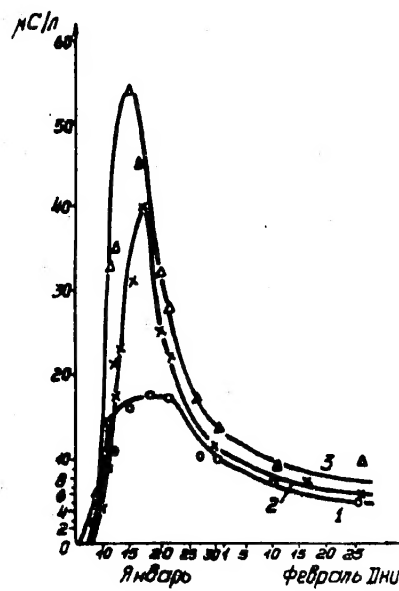


Рис.6. Содержание суммарной  $\beta$ -радиоактивности в скважинах колодца 1: 1- скважина 12; 2- скважина 13; 3- скважина 14



-24-

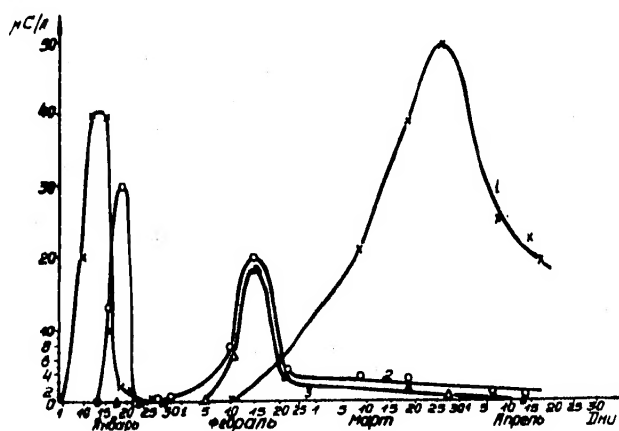


Рис.7 Содержание суммарной  $\gamma$  -радиоактивности в скважинах колодца 2: 1- скважина 3; 2- скважина 4; 3- скважина 5.

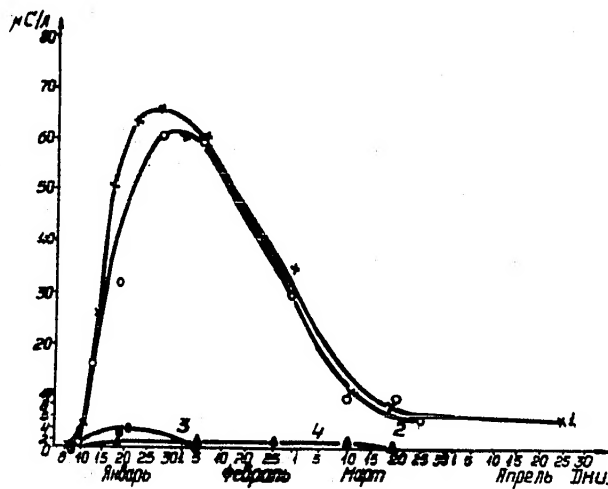


Рис.8. Радиохимический состав загрязнений воды скважины 11 (суммарная  $\beta$  -радиоактивность -1; содержание  $Ru$  -2;  $Sr$  -3;  $Cs$  -4)

-25-

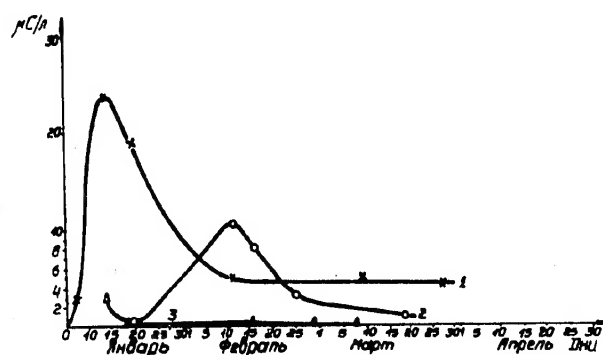


Рис.9. Радиохимический состав загрязнений воды,  
скважины 13 (содержание  $\text{Iz}$  -1;  
 $\text{Ru}$  -2;  $\text{Cs}$  -3)